

## 明 細 書

## 顆粒状の金属粉末

## 技術分野

本発明は、ゴム、樹脂、接着剤等への導電性付与材料をはじめ、導電性ペース  
5 ト等の導電性配線材料、触媒材料等に広く用いられる金属粉末を改良した顆粒状  
の金属粉末に関する。

## 背景技術

近年、ナノメートル ( $10^{-9}$  m) レベルで粒子・原子、合成プロセスを制御  
10 するナノテクノロジーを活用した機能・特性の著しい向上や新しい機能・特性を  
発現する材料の創製が広く検討されている。金属粒子の場合、粒子の大きさが小  
さくなると、その物性が粒子の体積依存から表面積依存へと変化するために、触  
媒活性や焼結温度の低温化など物性が変化的ことが広く知られていた。金属粒  
子の粒子径をサブミクロン以下のいわゆるナノレベルに微細化すると、上記に記  
15 載の触媒活性や焼結温度の低温化の他、磁気特性、光学特性、特定遺伝子の検出  
、発色などバルクの状態では得られない特異な機能を発現することから、機能性  
素材としてナノメートルサイズの金属粒子が特に注目を集めている。

ところが、金属粒子の粒子径がナノメートルサイズに微細化されるに従い、金  
属粒子間のファンデルワールス (Van der Waals) 力が増大し、粒子の凝集が強  
20 固になる問題が顕著になる。このような凝集に対しては一般に、凝集を抑制する  
分散剤を粒子表面にコートする方策が用いられるが、粒子の粒子径がナノメー  
トルサイズまで微細化した場合には凝集力があまりにも強固であり、再分散化が困  
難となる問題が生じる。また、凝集を防止する目的で金属粒子間距離を大きくす  
ると、確かに凝集は低減されるものの、秤量や搬送・梱包等のハンドリングが困  
25 難になる問題が生じる。

このため、金属粒子の粒子径がナノメートルサイズの微粒子では、コロイド状  
の分散溶液で供されるのが一般的であった。これらの技術については、特開平 1  
1-80647号公報及び特開 2001-35255号公報を参照されたい。

一方で、金属粒子を樹脂・接着剤等の他の材料と複合化する場合、添加量の管

理が容易であることや、水や有機溶媒等の分散媒が樹脂・接着剤等の複合材料に対し不具合が生じることがあるため、一般には金属粒子は乾燥状態のものをを用いることが好ましく、ハンドリング性に優れ、再分散性に優れる乾燥粉末が待ち望まれていた。

5

#### 発明の開示

本発明の目的は、ゴム、樹脂、接着剤等への導電性付与材料をはじめ、導電性ペースト等の導電性配線材料、触媒材料等に広く用いられる金属粉末に関し、主としてナノメートルサイズの微細な金属粒子により構成されている顆粒状乾燥粉末であり、ハンドリング性に優れ、しかも容易に再分散できる金属粉末を提供することを目的とする。

本発明は、水、有機溶媒またはこれらの混合物と、平均粒子径が1 nm以上、100 nm以下の金属粒子と、該金属粒子の表面に吸着しうる有機化合物とを含む溶液から、水又は有機溶媒の大部分を除去して得られ、その嵩密度が1.0 g/m<sup>3</sup>以上、5.0 g/m<sup>3</sup>以下であることを特徴とする顆粒状の金属粉末である。本発明になる顆粒状の金属粉末は、コロイド液でもなく、粉体として取り扱いでき、又、使用時には水、有機溶剤またはこれらの混合物により再分散が可能となる。

前記金属粉末は、前記金属粉末の粒子径が1 μm以上、100 μm以下である  
とより使用時の取り扱い（特に計量時）が良く、好ましい。

前記金属粉末中の残存有機化合物は、その含有量がC量換算で0.1重量%以上、20重量%以下であると、水、有機溶剤またはこれらの混合物への分散性が特によい。

さらに、前記金属粉末中の水分量が0.1重量%以上であると、前記金属粒子の凝集力を抑制し、同時に適度な再分散性を付与できる。

前記金属粒子は、元素記号Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Sn、W、Ir、Pt及びAuから構成される群より選択される金属、合金又は金属複合体であると、特にその効果が顕著である。

本発明になる顆粒状の金属粉末は、乾燥された顆粒状であるため、従来のコロ

イド状のものに比べ、ハンドリング性に優れており、しかも容易に再分散できるため、複合化する樹脂・接着剤等の他の材料との添加量管理が容易であり、分散媒による相溶性の選択等を気にせず使用できるといった利点がある。

## 5 発明を実施するための最良の形態

本発明は、平均粒子径  $1\text{ nm}$  以上、 $100\text{ nm}$  以下の金属粒子より主として構成される顆粒状の金属粉末である。前記したように、一般には金属粒子の粒子径がナノメートルサイズに微細化するに伴い粒子間の凝集力は強固になる。従って、こうしたナノサイズの金属粒子を使用する際には、先行技術のようなコロイド粒子とするか、本発明のように乾燥させて顆粒状にする必要がある。

また、粒子の形状は真球の他、楕円状、扁平状、鱗片状、その他金平糖状などの異形状のもの、あるいは不定形のものなど、任意の形状のものをを用いることができ、異なる形状の粒子の混合物であっても良い。また、金属粒子の平均粒子径および顆粒状の金属粉末の平均粒子径は走査型電子顕微鏡 (SEM) などの直接観察法により、概ね  $30$  粒子以上の粒子径の平均値より求めることができる。ここで、金属粒子の形状が真球状でない場合、粒子の最長辺の長さを粒子径と規定している。また平均粒子径は、直接観察法の代替法としてレーザー回折式などの公知の粒度分布計も適宜用いることができる。

そして、その顆粒状の金属粉末の嵩密度が、 $1.0\text{ g/ml}$  以上、 $5.0\text{ g/ml}$  以下であるものが、実用性に富む。

ここで、顆粒状の金属粉末の嵩密度が  $1.0\text{ g/ml}$  未満の場合、顆粒状の金属粉末の内部に多くの空隙が存在し、この空隙を起点に容易に顆粒状の金属粉末が破壊する可能性があるため、ハンドリングを丁寧にする必要がある。また、飛散しやすいため秤量時に計量しにくい。逆に、顆粒状の金属粉末の嵩密度が  $5.0\text{ g/ml}$  を超える場合、顆粒状の金属粉末の内部には空隙がほとんど含まれず、その結果、顆粒状の金属粉末が破壊しにくくなる為、溶媒の浸透が抑えられ、金属粉末の再分散性が低下する。

また、前記嵩密度の範囲内において、顆粒状の金属粉末の粒子径は  $1\text{ }\mu\text{m}$  以上、 $100\text{ }\mu\text{m}$  以下であることが好ましい。この理由は、顆粒状の金属粉末の粒子

径が  $1\ \mu\text{m}$  未満の場合、顆粒状の金属粉末に外力が印加されても顆粒状の金属粉末は破壊しにくく、結果として金属粉末の溶媒への再分散性が低下する。逆に、顆粒状の金属粉末の粒子径が  $100\ \mu\text{m}$  を超える場合、顆粒状の金属粉末を溶媒によって破壊するのに多大な時間を要し、結果として事実上、顆粒状の金属粉末の溶媒への再分散性が低下する。

さらに、顆粒状の金属粉末には有機化合物が含まれており、その含有量をC量換算にて0.1重量%以上、20重量%以下とすることが好ましい。理由は、顆粒状の金属粉末に含まれる有機化合物の含有量がC量換算にて0.1重量%未満の場合、ナノメートルサイズの微細な金属粒子間の抵抗が大きくなりすぎるため、再分散性を低下させる。逆に、顆粒状の金属粉末に含まれる有機化合物の含有量がC量換算にて20重量%を超える場合、有機化合物がナノメートルサイズの微細な金属粒子間の粘結剤としての作用を発現するため、かえって再分散性を低下させる。

顆粒状の金属粉末に含まれる有機化合物は、金属粒子表面に吸着しうる有機化合物であれば任意の有機化合物を用いることができ、特にO、N、Sなどの極性基を形成する元素が構造体の主鎖もしくは修飾基に含まれているものが好ましい。具体的にはカルボン酸基やアミノ基、ニトロ基、第4級アンモニウム、塩基性窒素原子を有する複素環基、スルホン基などの官能基を有する有機化合物を挙げることができる。また、O、N、Sなどの極性基を形成する元素が構造体の主鎖もしくは修飾基に含まれていないものであっても金属原子との親和・吸着性に優れる官能基を有する有機化合物も好適に用いることができる。具体的にはフェニル基、ラウリル基、ステアリル基等を挙げることができる。

また、顆粒状の金属粉末に含まれる水分量を0.1重量%以上とすることが好ましい。理由は、顆粒状の金属粉末に含まれる水分量が0.1重量%未満の場合、金属粒子間での抵抗が大きくなりすぎるため、再分散性を低下させる。

水分含有量の上限は、水分により顆粒状の金属粉末が凝集する状況になる現象を回避できる量である。

本発明になる顆粒状の金属粉末の金属成分は、元素記号がCr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Sn、W、Ir、P

t 及び Au よりなる群より選択される金属、合金又は金属複合体が好適に用いられる。また、不可避免的に混入するイオン性不純物は 1 重量%以下の範囲であればその性質に大きな差異は見られない。

このような顆粒状の金属粉末は、前記の物性を満たすものであればその製造方法には依存しない。好適に用いられる製造方法としては、平均粒子径 1 nm 以上、100 nm 以下の金属粒子を水、有機溶剤もしくはその混合物等の媒体中に分散させた懸濁液を準備し、その懸濁液をスプレードライ乾燥法もしくは凍結乾燥法による乾燥プロセスを経るものである。乾燥前の状態において平均粒子径 1 nm 以上、100 nm 以下の金属粒子間に水分が存在しているが、この乾燥方法では当該水分が急激に気化し、その際に金属粒子間に適度な空洞が生じ好適な嵩密度を有する顆粒状の金属粉末を得ることができる。ここで、懸濁液中の固形分濃度は 5 重量%以上、75 重量%以下の範囲であれば乾燥時に適度な空洞が生成するため、特に好ましい。

ここで顆粒状の金属粉末に含まれる有機化合物は懸濁液に添加したり、あるいは平均粒子径 1 nm 以上 100 nm 以下の金属粒子に表面コート等により含ませておく等の方策を用いることができ、これらの方策を組み合わせることも出来る。

## 実施例

### 20 (実施例 1)

本発明は、以下の実施例により限定されるべきものではない。

(試料 1～4：懸濁液濃度)

平均粒子径 20 nm の球状 Ag 粒子が懸濁し、樹脂のポリビニルピロリドン (PVP と略) を含んでいる水溶媒系懸濁液を用意した。金属粒子の濃度を 4 種類変えたものを用意し、試料 1～4 とした。その内容を表 1 に示す。

この水溶媒系懸濁液をそれぞれ、スプレードライ乾燥機を用いて、入口温度 180℃、懸濁液投入量 2.0 kg/h、アトマイザーディスク回転数 3000 rpm の乾燥条件で乾燥し、4 種類の顆粒状の金属粉末を得た。

得られた顆粒状の金属粉末をそれぞれ 100 g 採取し、メスシリンダーを用い

て見掛け体積を測定し、嵩密度を求めたところ、表 1 に示す結果となった。この結果より、懸濁液濃度が 8.5 重量%である試料 2 と、懸濁液濃度が 2 重量%である試料 4 は本発明の範囲に収まらなかった。特に、試料 4 は粉末がふわふわと浮遊し、秤量等のハンドリングが厄介であった。

- 5      また、得られた顆粒状の金属粉末の一部を光学顕微鏡（100倍～500倍）を用いて観察したところ、30粒子の粒子平均径が表 1 に示す値となった。

さらに顆粒状の金属粉末の一部を採取し、LECO法（有機物を燃焼させ、発生ガスを赤外吸収により計測する方法）によりそれぞれ測定した結果、試料 1～4での結果は、表 1 に示す結果となった。

- 10      別に顆粒状の金属粉末を 100 g 採取し、真空乾燥機に入れ、機内温度 80℃で 24 時間静置した後、重量を測定し、前後の重量より、顆粒状の金属粉末に含まれる水分量を測定した結果、試料 1～4 共に 0.8 重量%であった。

- 得られた 4 種類の顆粒状の金属粉末を各 100 g 採取し、水 100 g に加え、マグネティックスターラーを用いて 50 rpm で 10 分間攪拌し、再分散性を評価した。ここで試料 4 は、水に加えても浮遊し、攪拌できず、評価も出来なかった。残りの試料の評価方法は、攪拌後のビーカー底部を黙視確認し、沈殿物があるものは D（不合格）、沈殿が出来ないものは C とした。さらにそのまま放置しても沈殿が発生しないものは B、24 時間放置した後、同様の観察を行い、沈殿が発生しないものは A とした。ここで試料 1 及び 3 は 24 時間後の沈殿が発生せず、試料 2 は攪拌後すぐに沈殿物が確認された。
- 15      20

なお、ハンドリング性については、評価を以下のようにした。

開放的な環境でも飛散しないもの：A

3 面囲いの中で飛散しないもの      ：B

フード内で飛散しないもの           ：C

- 25      フード内でも飛散するもの           ：D（不合格）

表 1

資料 No.	懸濁液 濃度 (重量%)	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	有機物含 有量 (C換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハイドリング 性	再分 散性
1	50	3.5	55	3.5	0.8	A	A
2	85	5.5	48	3.4	0.8	B	D
3	10	1.2	60	3.5	0.8	B	A
4	2	0.8	70	3.6	0.8	D	—

注；試料 4 は、再分散性評価できず。

(実施例 2)

5 (試料 5～8：アトマイザディスク回転数)

平均粒子径 85 nm の球状 Ag 粒子を含有する水溶性系懸濁液を用意した。この水溶性系懸濁液を用い、スプレードライ乾燥時のアトマイザディスク回転数を 4 条件設定してスプレードライ乾燥をし、条件ごとに得られた試料を、試料 5～8 とした。

- 10 得られた顆粒状の金属粉末の試料 5～8 について、実施例 1 で評価した項目を同様な方法で評価した。その結果を纏めて表 2 に示す。

表 2 の結果から、アトマイザディスクの回転数による、出来上がった顆粒状の金属粉末への影響は、顆粒の平均粒子径に効果的である。特に、回転数が大きい試料 5 は顆粒状の金属粉末の平均粒子径が細くなるため、また、回転数が小

- 15 さい試料 8 は顆粒状の金属粉末の平均粒子径が大きくなるため、それぞれ再分散性が低下する。

表 2

資料 No.	アトマイザ ディスク回 転数 (rpm)	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	有機物含 有量 (C換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハイドリング 性	再分 散性
5	50000	2.2	0.6	1.5	0.5	A	C
6	30000	2.0	1.5	1.4	0.5	A	A
7	5000	2.3	85	1.5	0.6	A	A
8	2000	2.1	120	1.5	0.5	A	C

## (実施例 3)

(試料 9 ～ 12 : スプレードライ時の懸濁液投入量)

平均粒子径 6 nm の球状 Ag 粒子を含有する水溶性系懸濁液を用意した。この  
5 水溶性系懸濁液を用い、スプレードライ乾燥時の懸濁液投入量を 4 条件設定して  
スプレードライ乾燥をし、条件ごとに得られた試料を、試料 9 ～ 12 とした。

得られた顆粒状の金属粉末の試料 9 ～ 12 について、実施例 1 で評価した項目  
を同様な方法で評価した。その結果を纏めて表 3 に示す。

表 3

資料 No.	懸濁液 投入量 (kg/h)	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu$ m)	有機物含 有量 (C 換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハンドリング 性	再分 散性
9	2.0	3.8	55	6.2	0.8	A	B
10	0.1	3.8	60	6.0	0.05	A	C
11	3.0	3.6	55	6.0	0.15	A	B
12	5.0	3.8	58	6.2	1.5	C	B

10

表 3 より試料 10 は作製された顆粒状の金属粉末の水分量が少ないため、再分  
散性においてやや劣るが使用可能である。また、試料 12 は、作製された顆粒状  
の金属粉末の水分量が多めになるため、やや凝集しやすくなり、さらさらの粉末  
のイメージはない。

## 15 (実施例 4)

(試料 13 ～ 16 : 有機物含有量)

平均粒子径 50 nm の球状 Ag 粒子を含有する、樹脂濃度が異なる 4 種類の  
水溶性系懸濁液を用意した。使用した樹脂は PVP である。これらの試料をスプレ  
ードライ乾燥により顆粒状の金属粉末とし、それぞれ試料 13 ～ 16 とした。

20 得られた顆粒状の金属粉末の試料 13 ～ 16 について、実施例 1 で評価した項  
目を同様な方法で評価した。その結果を纏めて表 4 に示す。

表 4 より、有機物含有量が少ない試料 13 は、樹脂の粘着性が不十分の傾向に  
あり、ハンドリング時に一部微粉化する傾向が見えた。また、再分散性において



も、微粉同士が強固に付着しており、分散が不十分であった。逆に試料 1 6 において樹脂量が多くなると、ハンドリング性は問題ないが、再分散性において樹脂の溶解による時間が大きいため、必要攪拌時間が長くなった。

表 4

資料 No.	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	有機物含 有量 (C換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハントリンク <sup>®</sup> 性	再分 散性
1 3	3.6	60	0.03	0.8	C	C
1 4	3.8	51	0.12	0.8	A	B
1 5	3.8	68	18.0	0.8	A	B
1 6	3.9	55	21.5	0.8	A	C

5

(実施例 5)

(試料 1 7 ~ 1 9 : 金属粒子の変更その 1)

平均粒子径 80 nm の球状 Au 粒子を含有する、固形分濃度 50 重量% のテトラデカン有機溶媒懸濁液を用意した。この懸濁液にはポリビニルアルコール (PVA) が含まれている。この懸濁液を用いてスプレードライ乾燥を行い、顆粒状の金属粉末試料 1 7 ~ 1 9 を得た。

10

得られた顆粒状の金属粉末の試料 1 7 ~ 1 9 について、実施例 1 で評価した項目を同様な方法で評価した。その結果を纏めて表 5 に示す。

表 5

資料 No.	懸濁液 濃度 (重量%)	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	有機物 含有量 (C換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハントリンク <sup>®</sup> 性	再分 散性
1 7	50	3.0	80	3.0	0.8	A	A
1 8	85	5.5	66	3.1	0.8	B	D
1 9	10	0.8	74	3.0	0.8	E	—

15

表 4 より、嵩密度が大きくなった試料 1 8 は、再分散時に凝集力が大きく微粉に分散しにくいため、攪拌後に沈殿が見られた。逆に嵩密度が小さくなった試料 1 9 では、顆粒状の金属粉末のハンドリング時、ふわふわとして計量等が困難で

あり、再分散性の測定時も、水の上に浮いた状態のため分散できなかった。

(実施例 6)

(試料 20～22：金属粒子の変更その 2)

- 5 平均粒子径 10 nm の 70 重量% Ag と 30 重量% Pd の合金球状粒子を含有する、固形分濃度 35 重量% のエチルアルコール有機溶媒懸濁液を用意した。この懸濁液には PVP が含まれている。この懸濁液を用いてスプレードライ乾燥を行い、顆粒状の金属粉末試料 20～22 を得た。

得られた顆粒状の金属粉末の試料 20～22 について、実施例 1 で評価した項目を同様な方法で評価した。その結果を纏めて表 6 に示す。

10

表 6

資料 No.	懸濁液 投入量 (kg/h)	嵩密度 (g/ml)	顆粒状の 金属粉末 粒子径 ( $\mu$ m)	有機物 含有量 (C 換算 重量%)	水分量 (重量%)	ハンドリング 性	再分 散性
20	2	1.8	54	2.5	0.6	B	A
21	0.1	1.8	60	2.5	0.05	B	C
22	2	0.8	125	2.6	0.6	B	—

表 6 に示すとおり、試料 20 はハンドリング性及び再分散性において問題なく使用できる。水分量が少なかった試料 21 は、再分散性測定時に放置しておいたら沈殿が始まった。

- 15 また、嵩密度が小さな値となった試料 22 は、顆粒状の金属粉末粒子径が大きいためにハンドリング時は特に問題がなかったが、再分散性測定時に水に浮いてしまうため、計測できなかった。

#### 産業上の利用可能性

- 20 本発明になる顆粒状の金属粉末は、ナノメートルサイズの金属微粉末をコロイド状にして保管するよりも長期に亘って安定して保管でき、使用時に溶媒の限定を気にせずに使用できるため、今後のナノメートルサイズ金属微粉末を必須とする素材として、その応用範囲は広い。

## 請求の範囲

1. 水、有機溶媒またはこれらの混合物と、平均粒子径が1 nm以上、100 nm以下の金属粒子と、該金属粒子の表面に吸着しうる有機化合物とを含む溶液から、水又は有機溶媒の大部分を除去して得られ、その嵩密度が1.0 g/ml以上、5.0 g/ml以下であることを特徴とする顆粒状の金属粉末。
2. 前記金属粉末の粒子径が1 μm以上、100 μm以下である1に記載の顆粒状の金属粉末。
3. 前記金属粉末中の残存有機化合物は、その含有量がC量換算で0.1重量%以上、20重量%以下である1又は2に記載の顆粒状の金属粉末。
- 10 4. 前記金属粉末中の水分量が0.1重量%以上である1乃至3のいずれかに記載の顆粒状の金属粉末。
5. 前記金属粒子は、元素記号Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Sn、W、Ir、Pt及びAuから構成される群より選択される金属、合金又は金属複合体である1乃至4のいずれかに記載の
- 15 顆粒状の金属粉末。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/009309

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B22F1/00, 1/02, 9/24, B01J13/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B22F1/00, 1/02, 9/24, B01J13/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 07-232965 A (INSTITUT FÜR NEUE MATERIALIEN gemeinnützige GmbH), 05 September, 1995 (05.09.95), Claims; Par. Nos. [0018], [0041], [0042] & US 5590387 A1 & EP 650945 A2	1-5
Y	JP 11-310804 A (H.C.Starck GmbH. & Co.KG), 09 November, 1999 (09.11.99), Claims; Par. Nos. [0003], [0009], [0014] & US 2002-108469 A1 & DE 19855998 A1	1-5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 September, 2004 (17.09.04)Date of mailing of the international search report  
05 October, 2004 (05.10.04)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B22F1/00, 1/02, 9/24, B01J13/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B22F1/00, 1/02, 9/24, B01J13/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 07-232965 A (インステイトウト・フユア・ソ イエ・マテリアリエン・ゲマインニユツトツイゲ・ゲゼルシャフト ・ミット・ベシユレンクテル・ハフツング) 1995. 09. 0 5, 特許請求の範囲, 【0018】, 【0041】, 【0042】 & US 5590387 A1 & EP 650945 A2	1-5
Y	JP 11-310804 A (エイチ・シー・スタルク・ゲゼル シャフト・ミット・ベシユレンクテル・ハフツング・ウント・コン パニー・コマンジツトゲゼルシャフト) 1999. 11. 09, 特	1-5

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 09. 2004

国際調査報告の発送日

05.10.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

井上 猛

4K

9269

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	許請求の範囲, 【0003】, 【0009】, 【0014】 & US 2002-108469 A1 & DE 19855998 A1	